

⑤ Int. Cl.

B 01 j 17/08  
H 05 b 1/00

⑥ 日本分類

10 A 41  
18(7) D 522.4  
67 J 0

⑦ 日本国特許庁

## 特 許 公 報

⑧ 特許出願公告

昭49-36523

⑨ 公告 昭和49年(1974)10月1日

発明の数 1

(全7頁)

1

### ④ 結晶製作装置

⑪ 特 願 昭45-82438

⑫ 出 願 昭45(1970)9月18日

⑬ 発 明 者 水谷卓之

東京都港区芝5の7の15日本電  
気株式会社内

同 松海紘一

同所

⑭ 出 願 人 日本電気株式会社

東京都港区芝5の7の15

⑮ 代 理 人 弁理士 内原晋

### 図面の簡単な説明

第1図は輻射線のエネルギーにより結晶を製作する装置の一実施例を示す図、第2図は本発明の一実施例を示す図、第3図は冷却空気流量とランプ寿命との関係を示すグラフ、第4図は第1図の装置に使用されている反射鏡の寸法関係を示す図、第5図は反射鏡の寸法と結晶の前後に照射される光量の差との関係を示すグラフ、第6図は結晶の前後に照射される光量の差と結晶内の温度差との関係を示すグラフ、第7図は反射鏡の長径に対する短径の比と反射鏡の容積との関係を示す図である。

### 発明の詳細な説明

本発明は輻射線を反射鏡で集中することによって結晶を成長させる装置に関するものである。

第1図は輻射線を反射鏡で集中することによって結晶を成長させる装置の一実施例を示す図であり、1は輻射線を発する光源を示し、ここではハロゲンランプを使用した場合が示されており、2はそのフィラメントである。3はハロゲンランプ1の光を反射して集中するための回転楕円面鏡で、ハロゲンランプ1のフィラメント2はその一方の焦点F<sub>1</sub>上に設けられている。4は棒状の結晶の種、5は棒状の結晶の素材であり、上記回転楕円

2

面鏡3のもう一方の焦点F<sub>2</sub>を通る鉛直軸に各々の軸が一致するように、且つ、種4と素材5の接合部が上記焦点F<sub>2</sub>上に位置するように設置されている。

5 ハロゲンランプ1のフィラメント2を発した光は矢印6, 7, 8, 9で示されたように反射鏡3で反射されて反射鏡3の焦点F<sub>2</sub>に集中される。従つて、種4と素材5の接合部は高温に加熱されて熔融し熔融域10が形成される。

10 種4はチャック11に取付けられており、さらにチャック11は下部保持シャフト12に取付けられている。また素材5はチャック13に取付けられており、さらにチャック13は上部保持シャフト14に取付けられている。

15 下部保持シャフト12および上部保持シャフト14をそれ等の間隔を一定に保つたまま同時にゆるやかに下方に移動させることにより種4の上に新しい結晶が成長する。今述べた結晶の成長の機構は浮動帯域熔融法として広く知られている方法であり、下部保持シャフト12および上部保持シャフト14を同時に移動させる機構等も広く知られているのでそれ等の詳細な説明は省略する。

以上説明した第1図の装置の特徴の一つは光源としてハロゲンランプ1を使用した点にある。ハ

25 ロゲンランプは

(1)、その寿命期間中得られる光量が全く変化しない。(2)、点燈電圧を一定に保つことによりその出力を非常に安定に保つことができる。(3)、商用交流で点燈でき、その出力を非常に簡単な装置(電動変圧器等)で調整できる。

等の特徴がある。

従つて、第1図の装置において光源としてハロゲンランプ1を使用したことにより次のような特長が得られる。

35 (a) 非常に長時間にわたつて安定した出力が得られるので、非常に遅い成長速度でも安定に結晶を成長させることができる。

(2)

特公 昭49-36523

3

4

(b) 熔融域の温度を容易に調整することができる。

これらの特長は結晶成長には不可欠な条件であり、ハロゲンランプを光源として使用したことにより結晶成長に非常に適した装置が得られたことがわかる。

さらに、第1図の装置のもう一つの特徴は反射鏡3が回転楕円空洞のほとんど全面から成る反射面から構成されていることにある。ここで云うほとんど全面とは結晶の種4および素材5のその入のための穴、あるいはハロゲンランプ1のソケットが入り込む穴等やむを得ず除去された部分以外のすべての面を意味している。

この特徴から次の2つの利益が得られる。

- (1) ハロゲンランプ1の光を非常に有効に結晶に集中することができる。
- (2) 結晶の全局から均一に光が集中されるので結晶の周方向の温度分布を均一にすることができる。

これらの2つの特徴も結晶成長には不可欠のものであり、回転楕円面のはほとんど全面から成る反射鏡を使用することにより結晶成長に非常に適した装置が得られることがわかる。

以上述べたように、第1図のように回転楕円面のはほとんど全面から成る反射鏡3の一方の焦点 $F_1$ にハロゲンランプ1を設けた加熱装置を使用した結晶製作装置は上に挙げたいくつかの特徴のため非常に優れた装置であると云える。しかし、第1図のような装置にはいくつかの問題点があり、それ等を解決しなければ全く実用にならないことがわかった。

その問題点とは

- (1) 第1図の状態ではハロゲンランプを点燈するとランプの寿命がわずかに数時間にまで低下すること。
- (2) 反射鏡の形状が不適当であると結晶の周方向の温度分布が不均一になり結晶中の欠陥が多くなること

の2点である。

本発明は上記の2つの問題点を解決し第1図に示されたとき結晶製作装置を実用化することを目的としたものである。

先ず上記の問題点(1)に関する解決策について述べる。

第1図においてハロゲンランプ1のフィラメン

ト2から発した光はもう一方の焦点 $F_2$ に集中され、結晶の熔融域10にほとんどが吸収されその結果熔融域10は千数百℃にまで加熱される。このような高温においては放射による熱の放散が支配的であり、熔融域10で吸収された光の大部分は再び熔融域10の近傍から放射される。この熔融域10から放射された光は再び反射鏡3で反射されて焦点 $F_1$ の近傍に集中される。そのためランプ1あるいはフィラメント2はその光によつて

- 5 加熱されることになる。
- 10

特にランプ1の透明な石英製の外管は著しく加熱されることがわかった。測定結果によれば第1図の状態では1KWのランプを点燈したときランプ1の外管は1200℃程度まで過熱されることがわかった。ハロゲンサイクルが適正に働くためにはハロゲンランプの外管の温度は200℃～1000℃の範囲に保たれる必要があるので上の測定結果は明らかにその範囲をはずれている。

従つて、点燈後数10分で管壁が黒変しはじめそのためさらに管壁の温度が上昇し、ランプ管内の圧力によつて外管が膨張しはじめ数時間後にはフィラメントが切断するに至るのである。

従つて、第1図の状態では全く実用にならないことがわかった。そこで装置を第2図のようにすることによつて解決を計った。

第2図は本発明の一実施例であり、21はハロゲンランプ、22はハロゲンランプのフィラメント、23はハロゲンランプ21の光を反射して集中するための回転楕円面鏡でハロゲンランプ21のフィラメント22はその一方の焦点 $F_1$ 上に設けられている。24は棒状の結晶の種、25は棒状の結晶の素材であり、上記回転楕円面鏡23のもう一方の焦点 $F_2$ を通る鉛直軸に各々の軸が一致するように、且つ種24と素材25の接合部が上記焦点 $F_2$ 上に位置するように設置されている。

第1図の場合と同様、種24と素材25の接合部がランプからの光26, 27, 28, 29等によつて加熱され熔融し熔融域30が形成される。

種24がチャック31を介して下部保持シャフト32に取りつけられており素材25がチャック33を介して上部保持シャフト34に取りつけられている点および下部保持シャフト32と上部保持シャフト34とをそれ等の間隔を一定に保つて下方に移動させることにより種24の上に結晶が

成長することは第1図の場合と同様である。35は透明な石英管であり、種24、素材25、溶融域30の近傍の雰囲気は反射鏡23の内部の雰囲気と分離するために設けられている。さらに36は反射鏡23の内部に空気を吹き込むための口金を示す。第2図のような構造にして口金36から反射鏡23の内部に空気を吹き込むことによりハロゲンランプ21の寿命が著しく延長されることがわかった。なお、冷却空気を直接ランプ21に吹きつけると、ランプ21の外管が局部的に強く冷却されるため外管の温度が低くなりすぎてハロゲンサイクルが適正に働かなくなり局部的に外管が黒変して光出力の低下の原因となったり、ひどいときにはランプ21の寿命が著しく低下することがある。

このようなことを防止するために冷却空気の反射鏡23の内部への吹き込みはランプ21に吹き付けることを目的とするのではなく反射鏡23の内部の空気を取り換えることを目的として行われなければならない。

実験の結果では、反射鏡23内容積のいかににかかわらず2秒に1回以上の割合で反射鏡23の内部の空気を全部新しい空気と取り換えることにより、ランプの寿命を大巾に延長できることがわかった。第3図は口金36から反射鏡23(体積約2.3リットル)の内部に導入される空気の量と100V、1KWのハロゲンランプ21の寿命との関係を示すグラフであり、約70L/min以上の空気を導入することによりハロゲンランプ21の寿命が100時間以上に延長されることがわかる。

また150L/minの空気を導入した際の上記ハロゲンランプ21の外管の温度は300℃であり、ハロゲンサイクルが適正に働く温度範囲内にあることが確認された。

また、第1図の状態で100V、1KWのハロゲンランプ1を点燈した場合、反射鏡3の温度は200℃程度まで上昇するので水冷等の冷却を考慮する必要があるが、第2図の口金36から150L/minの空気を導入した場合には反射鏡23の温度は70℃程度までしか上昇しないので特に反射鏡23の冷却を考慮する必要はなくなった。

また石英管35の溶融域30の近傍の温度は反

射鏡23の内部に空気を導入しない場合には約800℃であつたので石英管35の内部から不純物が放出され結晶中に侵入する恐れがあつた。しかし口金36から反射鏡内部に150L/minの空気を導入した場合には石英管35の溶融域30の近傍の温度は200℃にすぎなかつた。従つて、石英管中の不純物が結晶中に侵入する可能性はほとんど無視できることがわかる。

このように反射鏡内部に空気を導入することにより、

- (1) ハロゲンランプの寿命を100時間以上に延長することができる。
- (2) 反射鏡の冷却が不要となる。
- (3) 結晶の周囲の雰囲気を分離するための石英管の温度が低下し石英管中の不純物が結晶中に侵入する可能性がなくなつた。

という著しい効果が得られ、第1図の方式の結晶製作装置を実用化することが可能となつた。

なお以上の説明では口金36から反射鏡23の内部に空気を導入する場合を説明したが、空気以外に窒素ガス、アルゴンガス等の不活性ガスを導入しても何等支障ないことは説明を要しない。また以上の説明においては口金36から反射鏡23の内部に空気を吹き込む場合を説明したが、逆に口金36から反射鏡23の内部の空気を吸い出してもその流量が同じであれば、吹き込んだ場合と同等の効果が得られることが確認された。

なお光学系の内部に空気を吹き込むためには口金36を送風機あるいは工場等に設置された圧力空気源等に接続すればよいし、逆に吸い出す場合には排気ポンプ等を接続すればよい。これらの手段は広く知られているものであるから第2図中には図示しなかつた。

また上の説明では結晶の溶融域の近傍の雰囲気を反射鏡の内部の雰囲気と分離するため、石英管35を使用した場合について述べたが別に石英管である必要はなく透明な耐熱性の物質から成る管であれば支障がないことは明らかである。

次に前述した第1図の装置の問題点(2)について説明する。先の第1図の装置に関する説明の中で「結晶の全周から均一に光が集中されるので結晶の周方向の温度分布を均一にすることができる。」と述べられているが、これは定性的には成立つが定量的には必ずしも成立たない。そのため光学系

(4)

特公 昭49-86528

7

8

の条件が不適当であると結晶の周方向の温度分布が不均一となり内部歪等の欠陥の多い結晶が得られる原因となつて、第1図の装置の実用性がなくなるのである。今、第1図において熔融域10の前方(ランプに面する側)に照射される光の量とその反対側から照射される光の量との比較を考える。第4図は第1図の反射鏡の寸法関係を示す図であり、40は反射鏡を構成する回転楕円を示し、 $2a$ および $2b$ はそれぞれ回転楕円40の長径および短径を示し、 $f$ は楕円40の中心と焦点の距離を示す。今、焦点 $F_2$ を通り楕円の長軸 $A-A$ に直角な平面 $P$ により回転楕円40を切断した場合を考え、回転楕円40の $P$ の左側の部分を41とし右側の部分を42とする。

焦点 $F_1$ から出た光のうち回転楕円41で反射された光は熔融域10の前方(ランプに面する側)を照射し、回転楕円42で反射された光は、その反対側を照射するものと考えられる。回転楕円42で反射される光の量は焦点 $F_1$ から回転楕円42を見込む立体角 $\varphi_1$ に比例するものと考えられる。この立体角 $\varphi_1$ は次の式から計算される。

$$\varphi_1 = 2\pi \left( 1 - \frac{2\sqrt{1 - \frac{b^2}{a^2}}}{2 - \frac{b^2}{a^2}} \right) \dots\dots\dots (1)$$

また、回転楕円41を見込む立体角 $\varphi_2$ は次の式で計算される。

$$\varphi_2 = 4\pi - \varphi_1 = 2\pi \left( 1 + \frac{2\sqrt{1 - \frac{b^2}{a^2}}}{2 - \frac{b^2}{a^2}} \right) \dots\dots\dots (2)$$

従つて、熔融域10の前方(ランプに面する側)に照射される光の量に対するその反対側に照射される光の量の比 $Q$ は $\varphi_1/\varphi_2$ から求められ、それは照射される光の結晶の周方向における均一性を表わすものと考えられる。 $Q$ は次の式から計算できる。

$$Q = \frac{1 - \frac{2\sqrt{1 - \frac{b^2}{a^2}}}{2 - \frac{b^2}{a^2}}}{1 + \frac{2\sqrt{1 - \frac{b^2}{a^2}}}{2 - \frac{b^2}{a^2}}} \dots\dots\dots (3)$$

(3)式を計算し回転楕円の長径に対する短径の比 $b/a$ と照射光の均一性を表わす $Q$ との関係を第5図に示した。

第5図は $b/a=1$ のときには $Q=1$ であるから前後から均一に光が照射されるが、 $b/a$ が1より小さくなると急激に $Q$ が小さくなり、前後から照射される光の量が不均一になることを示している。 $b/a=1$ は回転楕円が球に近ずいた極限の場合であり、実現不可能であるから回転楕円を反射鏡として使用した場合には事実上前後から不均一に光が照射されている状態で結晶を成長させざるを得ないことがわかる。

このように結晶の周方向におけるエネルギーの供給量が不均一の場合には通常第2図の矢印、38で示されたように結晶を回転させることによつて克服することができる。

しかし、エネルギーの供給量が極端に激しい場合にはその回転数を著しく高くしなければならず実用性がない。

第6図は、結晶の前後のエネルギー供給量の差と結晶を回転させた場合の結晶部の温度変化量との関係を結晶の回転数をパラメータにとつて示している。

また回転数が150RPMを超えると、熔融域の状態が不安定となり、溶液がこぼれることがあるので実用的でないことが結晶製作の経験からわかつている。

さらに結晶内の温度変化を $\pm 1^\circ\text{C}$ 以下にしないと結晶内部に欠陥の発生する可能性が強いので結晶内の温度変化が $\pm 1^\circ\text{C}$ 以上になる条件は実用的でないことが経験から云える。

上述のような経験に基づく制限を基にして第6図から判断すると $Q$ の値を0.11以上にしないと結晶製作装置は実用的でないことがわかる。また第5図から $b/a < 0.87$ の条件では $Q < 0.11$

となつて実用性がないことがわかる。

従つて第1図あるいは第2図のごとき装置における回転楕円反射鏡3または23の長径に対する短径の比は0.87より大きくないと実用性がないことがわかる。

また第2図のように装置を実用的にした場合の反射鏡23の2つの焦点 $F_1$ 、 $F_2$ の間の距離は石英管の半径+ハロゲンランプの外管の半径以上なければならないことは明らかであるが実用上はこの距離は5cm以上であることが望ましい。今この距離を定めて、回転楕円の長径と短径の比 $b/a$ の種々の値について回転楕円反射鏡の体積を計算した結果第7図が得られた。

第7図から $b/a$ が0.96を超えるとその体積が急激に増加するので装置が著しく大型となり実用的でないと判断される。

即ち第2図のような結晶製作装置を実用的にするためには光を集中するために使用される回転楕円反射鏡23の長径に対する短径の比 $b/a$ は次の条件を満たしていなければならない。

$$0.87 < b/a < 0.96 \quad \dots\dots (4)$$

以上に述べたように結晶の種と素材および熔融域の近傍の雰囲気は反射鏡の内部の雰囲気から分離する手段と反射鏡の内部に空気等のガスを吹き込む手段とを備えることと同時に反射鏡の長径に対する短径の比を上記(4)式の条件を満足させることによりはじめて第1図に示されたごとき結晶製作装置が実用化されることがわかつた。

最後に本発明の装置を使用して結晶を成長させ

た実例について述べる。即ち、長径170mm、短径160mmの金めつきされた反射鏡(体積約2.8リットル)中で、1.5KWのハロゲンランプを点灯し、150ℓ/minの空気を上記反射鏡の中に吹き込みながら点灯し、融点約1650℃のNi-Znフェライトを最初1時間当り500℃の割合で1650℃まで徐熱した後、約90RPMで回転させながら毎時1cmの成長速度で10時間かけて10cmの長さの単結晶に成長させ、さらに1時間当り300℃の速度で約8時間で徐冷して、全く欠陥のない8φのNi-Znフェライト単結晶を得ることができた。

また1本のランプの寿命期間中にそのようなサイクルを5~6回以上繰返すことができるので本発明の装置の実用性が非常に高いことがわかつた。

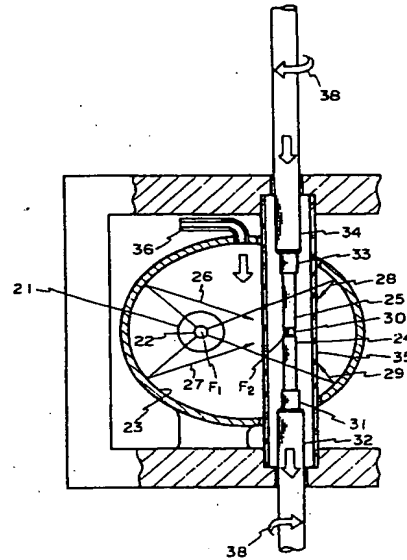
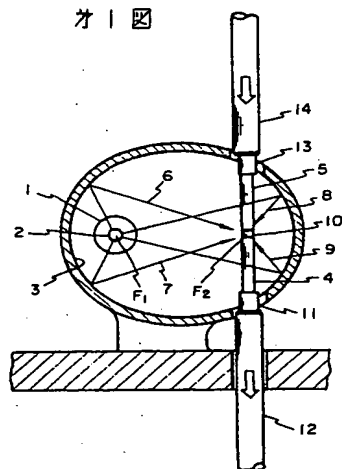
#### ⑦特許請求の範囲

1 回転楕円のほとんど全面を反射面として持つ回転楕円反射鏡の一方の焦点にハロゲンランプを設け、他方の焦点上に光を集中して加熱するとき加熱装置を使用した浮動帯域熔融法の結晶製作装置において、前記回転楕円反射鏡としてその回転楕円の長径に対する短径の比が0.87~0.96の範囲にあるものを使用し、かつ結晶の種、結晶の素材および熔融域の周囲の雰囲気と反射鏡の内部の雰囲気とを耐熱性の透明な物質から成る管によつて分離する手段を備え、さらに前記反射鏡の内部の気体を2秒に1回以上の割合で入れ換える手段を設けたことを特徴とする結晶製作装置。

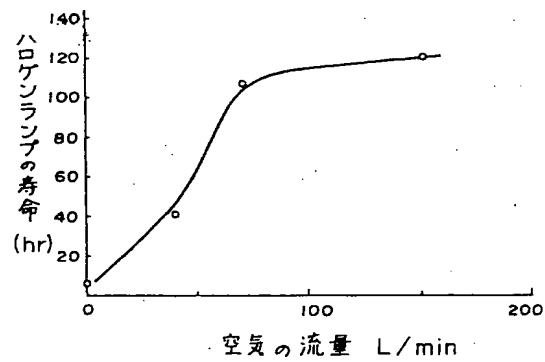
(6)

特公 昭49-36523

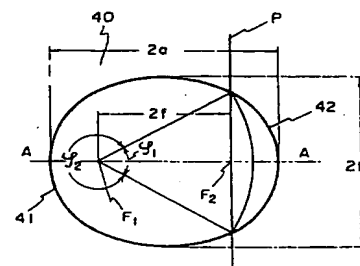
才2図



才3図



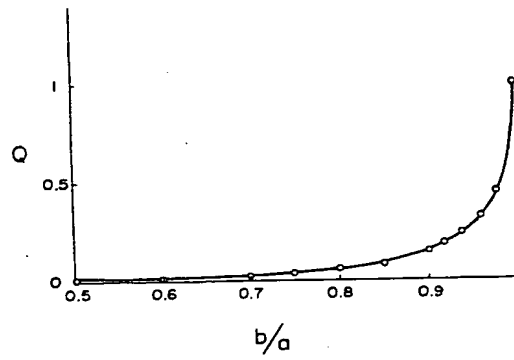
才4図



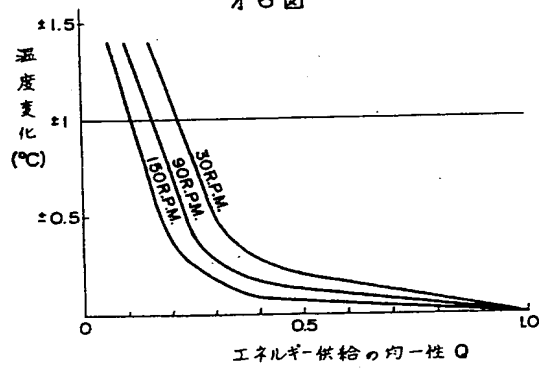
(7)

特公 昭49-36523

才5図



才6図



才7図

